

## 小角散乱によるサガンズギ接線壁マイクロフィブリル配向評価 Distribution of microfibril angle in tangential wall of “SAGAN-SUGI” (Japanese cedar) characterized by SAXS

廣沢 一郎<sup>a</sup>, 鈴木 直幸<sup>a</sup>, 馬込 栄輔<sup>a</sup>, 瀬戸山 寛<sup>a</sup>, 江島 淳<sup>b</sup>  
Ichiro Hirose<sup>a</sup>, Naoyuki Suzuki<sup>a</sup>, Eisuke Magome<sup>a</sup>, Hiroyuki Setoyama<sup>a</sup>, Atsushi Ejima<sup>b</sup>

<sup>a</sup>(公財)佐賀県産業振興機構九州シンクロトン光研究センター, <sup>b</sup> 佐賀県林業試験場  
<sup>a</sup>SAGA Light Source, <sup>b</sup> Saga Prefectural Forest Experimental Station

木材強度の指標のひとつである曲げヤング率と強い相関があるセルロース繊維(cellulose microfibril: CMF)の仮道管に対する配向角度(microfibril angle :MFA)の測定が、早期の優良品種選抜手法としてラジアータマツ、ベイマツ、実生のスギで検討されている。2022B 期に行った小角散乱測定で得られたサガンズギ(佐賀県林業試験場が開発した成長が早く軽くて高強度な新品種のスギ)の MFA は成熟材、未成熟材ともに従来品種のスギより小さく、人工交配によるスギ新品種開発においても MFA が早期の優良品種選抜法として活用できる可能性が示された。早期選抜は若齢であるほど効果が高いと見込まれるが、これまでの測定方法では若齢のため年輪曲率が小さい部位では十分な MFA の測定精度が得られない。今回の課題では、仮道管に沿った棒状に加工した試料を小角散乱で測定することにより年輪曲率が小さい部位の MFA を精度よく決定できた。しかしながら、この方法は柎目板状試料の走査測定と比較して、試料調製と測定に手間がかかる上に空間分解能も劣ることから、従来の測定法を補間するものと考えられる。

**キーワード：** 小角散乱、マイクロフィブリル、スギ、接線壁

### 背景と研究目的：

佐賀県林業試験場が開発した新品種のスギ(サガンズギ)は成長が早くて軽い(年輪間隔が広い)にもかかわらず従来品種よりも高強度である(佐賀県林業試験場業務報告書 令和元年、令和2年 pp.1-29, [https://www.pref.saga.lg.jp/kiji00367239/3\\_67239\\_226424\\_up\\_2suji87o.pdf](https://www.pref.saga.lg.jp/kiji00367239/3_67239_226424_up_2suji87o.pdf))。一般的に木材強度は年輪間隔に応じて単調に低下するにもかかわらず、サガンズギが高強度であることの原因を明らかにするため2022B期より SAXS 測定を行ってきた。その結果、木材強度の指標である曲げヤング率に対して強い負の相関を有するセルロース繊維束 (cellulose microfibril: CMF) の仮道管軸に対する配向方位角度 (microfibril angle : MFA) がサガンズギでは小さいことが明らかになった。また、サガンズギは成熟までの期間(放射壁の MFA がほぼ一定となるまでの期間)が短く、単位質量あたりの CMF 量が多いなど MFA 以外にもサガンズギの高強度に寄与していると思われる特徴が見出された(2022B1587)。更に、DNA による親子解析により明確になっている親子間の MFA の類似性を比較したところ、MFA は親から子へ遺伝する形質であることが判明し(サガンズギとその母親の MFA の植栽時から約30年までの経年変化に類似性が認められる)、SAXS による MFA 評価が人工交配によるスギ新品種開発における優良品種選抜法としての有用性も認められた(2023A1587)。

佐賀県林業試験場が進めている成長が早く軽量・高強度で花粉量の少ないスギ新品種の開発において、植栽から5年以下の若齢段階の個体を対象とした SAXS 測定は、これまで林木育種の分野で数十年の時間を要していた材質評価において、優良品種の早期選抜を可能にする方法になると期待される。しかし、これまで行ってきた SAXS 測定は年輪に垂直な細胞壁である放射壁の MFA に注目しているため、若齢で幹の直径が小さな時期では年輪の曲率半径が小さくなって年輪に平行な放射壁からの散乱が SAXS パターンに混入して正確な MFA を導出が出来ない。更に、これまでの測定結果から、接線壁の CMF の方が放射壁の CMF よりも10%程度細いことが明らかになって、接線壁と放射壁で MFA が異なっている可能性も浮上してきた。そこで今回の課題では、接線壁・放射壁それぞれの MFA が測定可能で、植栽から5年以下の若齢段階の個体にも適用できる MFA 評価手法の確立を目的として以下の測定を行った。

## 実験：

これまでに行った実験(2022B1587, 2023A1587)は生育期と MFA の関係を明らかにすることが狙いであったため、地上からの高さ 2 m の箇所から切り出した円盤から、中心(芯)を含んだ厚さ 5.5 mm 柎目板状に調製したが(図 1)、今回は長軸が仮道管にほぼ平行な太さ 1.5 mm 程度の棒状に加工した試料(図 2)を用いた。

前回と同様に BL19B2 の第 3 ハッチに設置された小角散乱装置で、検出器の感度特性も考慮して X 線エネルギー 18 keV、カメラ長 3 m で行った。ベヘン酸銀による較正によりカメラ長は 3043 mm と決定され、 $0.007 \text{ \AA}^{-1}$  から  $0.34 \text{ \AA}^{-1}$  の範囲で小角散乱プロファイルを得ることができた。放射壁及び接線壁の MFA を散乱パターンから導出するため棒状試料の長軸に対して垂直に X 線を入射し、試料長軸を回転軸として  $10^\circ$  間隔で  $350^\circ$  の範囲における小角散乱パターンを露光時間 10 秒で取得した(図 3)。

## 結果および考察：

図 4 は 2022B 期に測定した髄中心から 7.0 mm 離れた位置での波数  $0.17 \text{ \AA}^{-1}$  における小角散乱の方位角分布である(検出器の不感域処理を施している)。入射光に対して接線壁が平行かつ放射壁が垂直と近似できる髄中心から 15 mm 以上離れた位置(試料表面では早材に対応)では、 $0^\circ$  及び  $180^\circ$  方向近傍に接線壁由来の強い散乱が観測され、その両側に放射壁由来の散乱が観測されている。2つの放射壁由来の散乱は入射 X 線に対して手前側と後ろ側の細胞壁に対応するが、接線壁由来の散乱は樹の外皮側と髄側の 2つの散乱が重なるため、中央の接線壁由来の散乱の方が両側の放射壁由来の散乱よりも強い。一方、図 3 は  $0^\circ$  及び  $180^\circ$  方向近傍にある中央の散乱強度よりもその両側に約  $60^\circ$  離れた方位に同程度の散乱が観測されている。更に中央のピークの幅が著しく広く非対称になっている。これらの特徴は入射光に対して接線壁が平行で、かつ放射壁が垂直の近似が成立しないことを示し、髄中心からの距離とともに接線壁と放射壁に対する入射光方位が連続的に変化した散乱パターンとなっている。



図 1 2022B, 2023A 期に測定した試料片の例

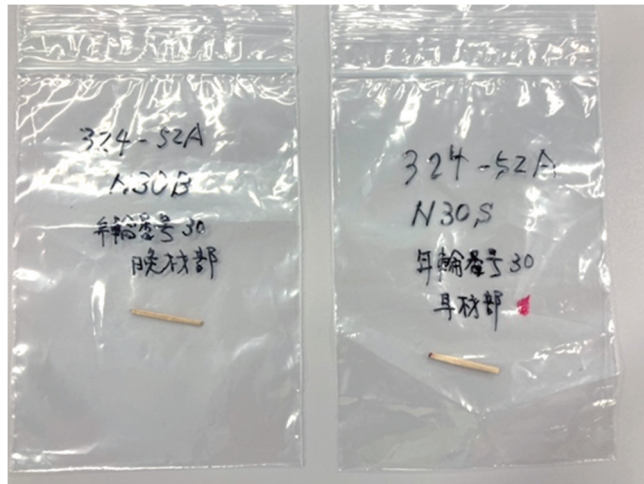


図 2 2023B1567 で測定した試料例

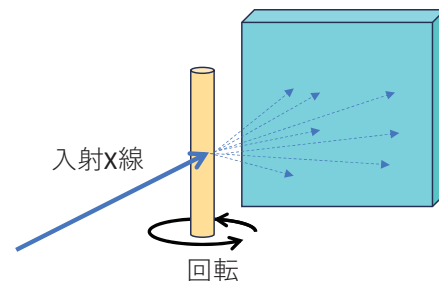


図 3 方位測定の設定

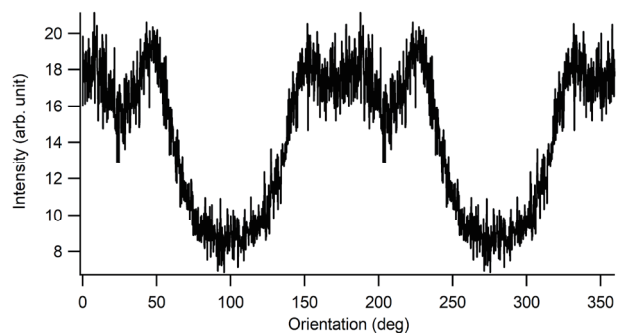


図 4 波数  $0.17 \text{ \AA}^{-1}$  での散乱強度の方位角分布の例。測定位置は髄中心より 7.0 mm。

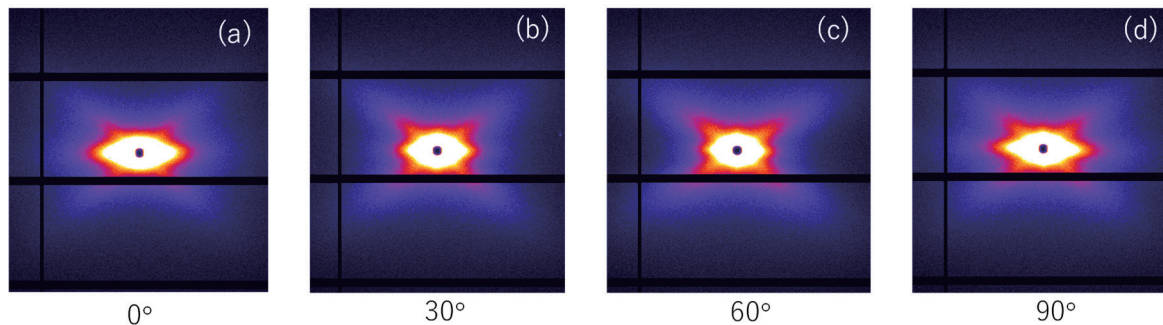


図5 各試料方位において測定された小角散乱パターンの例。(a), (b), (c), (d)はそれぞれ、X線が放射壁に平行になる配置を基準とした試料方位  $0^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $60^\circ$ ,  $90^\circ$  (接線壁に平行) での測定結果。

図5に棒状試料片(図2)における複数の入射方位での小角散乱パターンの測定例である。この図ではX線が放射壁にほぼ平行(接線壁に垂直)に入射する方位を  $0^\circ$  とし、接線壁にX線がほぼ平行に入射する  $90^\circ$  までを  $30^\circ$  間隔で示している。図5(a), (d)のようにX線が放射壁もしくは接線壁に平行に入射する方位では試料長軸に垂直な方向(図では水平方向)の散乱強度が  $30^\circ$ ,  $60^\circ$  方向(図5(b), (c))より強く、これらはそれぞれ接線壁及び放射壁のマイクロフィブリルからの散乱と考えられる。図5(a), (d)に見られる傾いた散乱は放射壁及び接線壁のマイクロフィブリルに対応し、放射壁と接線壁の散乱が明瞭に分離できている。これは測定試料を棒状に加工することでX線の入射方向の試料厚みが小さくなったことの効果であるが、棒状試料では試料外観から接線壁と放射壁の方向の判別が困難で、今回のように複数方位での測定が必須である。

一方、図5(c), (d)の試料方位  $30^\circ$ ,  $60^\circ$  では接線壁、放射壁両方のマイクロフィブリルからの散乱が混じって観測される。仮道管断面が理想的な矩形であれば4方向の直線状の散乱が観測されることが期待されるが、実際は種々の曲率を持った形態である上に仮道管長軸方位にも分布があるため2本の散乱が重なって幅の広い1本の散乱として観測されている。

図6は波数  $0.17 \text{ \AA}^{-1}$  における検出器上の方位(横軸、試料長軸と垂直になる検出器の水平方向を  $0^\circ$  としている)に対する散乱強度を各試料方位(縦軸)で示している。試料方位が  $0^\circ$ ,  $180^\circ$  では放射壁のマイクロフィブリル由来の散乱の両側に接線壁からの散乱が観測されている。接線壁由来の散乱の方が放射壁由来の散乱よりも強いことは、接線壁の方が放射壁よりも厚いことの反映と考えられる。 $30^\circ$ ,  $60^\circ$  等も含めた全測定結果は  $35^\circ$  のMFAで説明できる。

以上のように、細い棒状に加工した試料では年輪の曲率が小さい髓に近い部位のMFAが測定できることが明らかとなった。

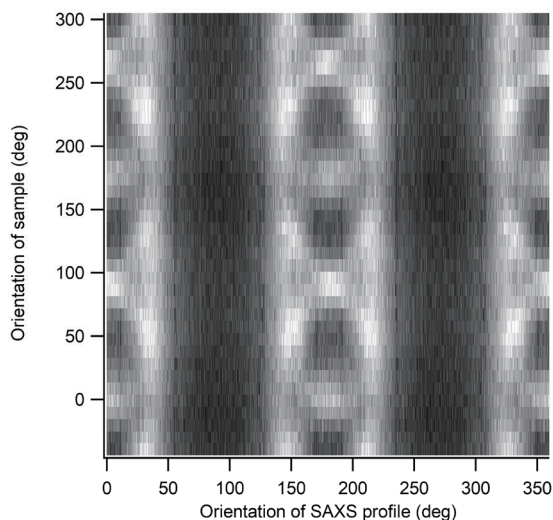


図6 波数  $0.17 \text{ \AA}^{-1}$  における検出器上の方位に対する散乱強度の各試料方位分布。白色が散乱強度の強い方位である。横軸が検出器上の方位(横軸、試料長軸と垂直になる検出器の水平方向を  $0^\circ$  としている)、縦軸が試料方位。

#### 今後の課題：

板状試料の走査測定と比較して約40倍の測定時間の短縮が主要な技術的課題である。